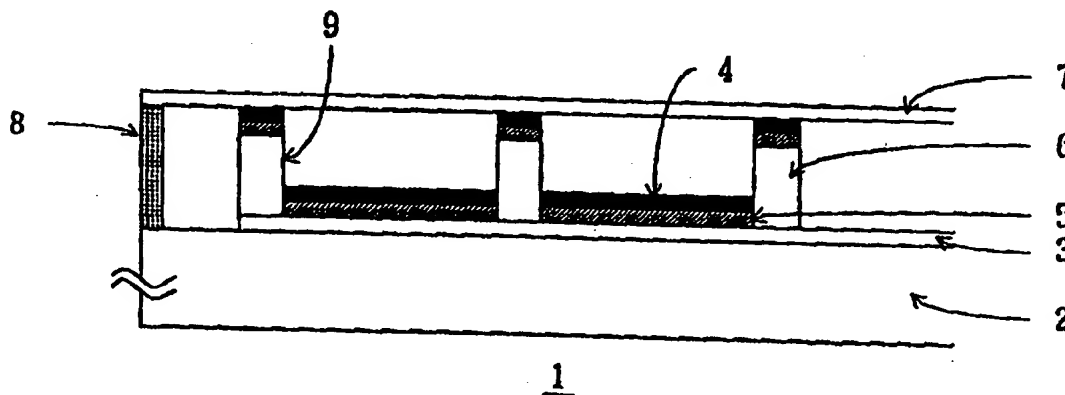




(51) 国際特許分類6 <b>H05B 33/22, 33/04, 33/10</b>	<b>A1</b>	(11) 国際公開番号 <b>WO97/31508</b>  (43) 国際公開日 1997年8月28日(28.08.97)
(21) 国際出願番号 PCT/JP97/00508  (22) 国際出願日 1997年2月24日(24.02.97)  (30) 優先権データ 特願平8/38217      1996年2月26日(26.02.96)      JP 特願平8/301678      1996年11月13日(13.11.96)      JP  (71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 出光興産株式会社(IDEMITSU KOSAN CO., LTD.)(JP/JP) 〒100 東京都千代田区丸の内三丁目1番1号 Tokyo, (JP) (72) 発明者; および (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ) 松浦正英(MATSUURA, Masahide)(JP/JP) 柴田 暢(EIDA, Mitsuru)(JP/JP) 細川地潮(HOSOKAWA, Chishio)(JP/JP) 〒299-02 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 出光興産株式会社内 Chiba, (JP) (74) 代理人 弁理士 大谷 保(OHTANI, Tamotsu) 〒105 東京都港区虎ノ門5丁目3番2号 神谷町アネックス4階 Tokyo, (JP)		(81) 指定国      JP, KR, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).  添付公開書類 国際調査報告書

(54) Title: **ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT AND METHOD FOR MANUFACTURING THE SAME**

(54) 発明の名称    有機エレクトロルミネッセンス素子及びその製造方法



(57) Abstract

A highly precise organic electroluminescent element which can uniformly emit light, is free from cross talk, can withstand external pressure, and can be sealed in an excellent state and a method for manufacturing the element. In the organic electroluminescent element (1) which is provided between a lower electrode (3) and its counter electrode (4) on a substrate (2) with an organic layer (5) containing a light emitting layer in between, an interlayer insulating film having a coefficient of water absorption of 0.1 % is provided in a non-radiative element section and the step sections (9) of the interlayer insulating film specify the boundary between the light emitting element part and non-radiative element part. In addition, parts of the step sections (9) vertically rise from the surface of the lower electrode (3) and a sealing plate or sealing lid (7) on the interlayer insulating film is pasted to the substrate (2) via adhesive layers (8).

(57) 要約

高精細，均一発光であり、クロストークがなく、外部からの圧力に強く、さらに封止にも優れた有機エレクトロルミネッセンス素子、及びその製造方法を提供することである。

基板 2 上の下部電極 3 と対向電極 4 との間に、発光層を含む有機層 5 を介在して設けてある有機エレクトロルミネッセンス素子 1 において、非発光素子部には吸水率が 0.1 % 以下の層間絶縁膜が設けてあり、層間絶縁膜の断差部分 9 が発光素子部分と非発光素子部分の境界を規定し、該断差部分が下部電極 3 の面に対しほぼ垂直に切り立っている箇所が存在しており、該層間絶縁膜上に封止板又は封止蓋 7 が基板 2 に接着層 8 を介して貼り合わせてあること等を特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子、及び該素子の製造方法。

情報としての用途のみ

PCTに基づいて公開される国際出願をパンフレット第一頁にPCT加盟国を特定するために使用されるコード

AL	アルバニア	EE	エストニア	LR	リベリア	RU	ロシア連邦
AM	アルメニア	ES	スペイン	LS	レソト	SD	スーダン
AT	オーストリア	FI	フィンランド	LT	リトアニア	SE	スウェーデン
AU	オーストラリア	FR	フランス	LU	ルクセンブルグ	SG	シンガポール
AZ	アゼルバイジャン	GB	ガボン	LV	ラトヴィア	SI	スロベニア
BB	バルバドス	GE	イギリス	MC	モナコ	SK	スロバキア共和国
BE	ベルギー	GH	イギリス	MD	モルドバ	SN	セネガル
BG	ブルガリア	GR	ギリシャ	MG	マダガスカル	SS	スーダン
BJ	ベナン	HN	ホンジュラス	MK	マケドニア	TD	チャド
BM	バハマ	HU	ハンガリー	ML	マリ	TG	トーゴ
BN	ブルネイ	IE	アイルランド	MN	モンゴル	TJ	タジキスタン
BO	ボリビア	IT	イタリア	MR	モーリタニア	TM	トルクメニスタン
BR	ブラジル	JP	日本	MW	マラウイ	TR	トルコ
BS	バハマ	KE	ケニア	MX	メキシコ	TT	トリニダード・トバゴ
BT	ブータン	KR	韓国	NE	ニジェール	UG	ウガンダ
BV	バークレー	KZ	カザフスタン	NL	オランダ	US	米国
BZ	ベリーズ	KG	キルギスタン	NO	ノルウェー	UZ	ウズベキスタン共和国
CA	カナダ	KP	北朝鮮	NZ	ニュージーランド	VN	ベトナム
CC	ココス	PK	パキスタン	PL	ポーランド	YU	ユーゴスラビア
CD	コンゴ	PR	プエルトリコ	PT	ポルトガル		
CE	セネガル	RU	ロシア	RO	ルーマニア		
CF	中央アフリカ共和国	SA	サウジアラビア				
CG	コンゴ	SC	スコットランド				
CH	スイス	SD	スーダン				
CI	コートジボワール	SE	スウェーデン				
CM	カメルーン	SG	シンガポール				
CN	中国	SI	スロベニア				
CO	コロンビア	SK	スロバキア共和国				
CR	コスタリカ	SN	セネガル				
DE	ドイツ	SS	スーダン				
		TD	チャド				
		TG	トーゴ				
		TJ	タジキスタン				
		TM	トルクメニスタン				
		TR	トルコ				
		TT	トリニダード・トバゴ				
		UG	ウガンダ				
		US	米国				
		UZ	ウズベキスタン共和国				
		VN	ベトナム				
		YU	ユーゴスラビア				

## 明 細 書

## 有機エレクトロルミネッセンス素子及びその製造方法

技術分野

本発明は有機エレクトロルミネッセンス素子に関し、さらに詳しくは、ディスプレイ等に用いた場合に高精細で均一発光であり、外部からの圧力にも強い有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、「有機EL素子」と略記する場合がある）に関するものである。

背景技術

従来、有機エレクトロルミネッセンス素子がディスプレイ用途として、盛んに開発が行われている。ディスプレイ用途では、有機EL素子のパターンニングの高精細さ、発光面の均一性、発光面のエッジの精密性等が要求されている。さらに、電極エッジにおいては、微小なショートが起きやすく、表示のクロストークの原因になっており、これらの課題の解決をも要求されている。また、封止には、封止板を基板に貼り合わせた素子が知られているが、ディスプレイには薄型化の要求があり、これら封止板も薄くなる傾向にある。

しかしながら、封止板が薄い場合、衝撃や外部からの圧力で封止板が素子に接触して、破損することもあり問題であった。

特開平3-250583号公報には、層間絶縁膜を備えた素子であって、パターン精度が良好で発光面の均一性が高い素子が開示されている。しかし、対向電極の作製には、マスク蒸着を用いているため、ラインピッチが $300\mu\text{m}$ 以下の高精細なディスプレイの作製が困難であった。

特開平 5 - 1 0 1 8 8 4 号公報には、層間絶縁膜を備えた素子であって、外表面を防湿性フィルムで覆った素子が開示されている。しかし、この素子は、防湿性フィルムの封止力が不十分なため、数千時間の放置後、水分や酸素によって陰極が侵され、ダークスポット（発光の欠陥）が生じて問題となっていた。

特開平 5 - 2 7 5 1 7 2 号公報には、壁状の層間絶縁膜を設け、斜め蒸着により陰極を形成することによりラインピッチが 1 0 0  $\mu$  m 程度の高精細ディスプレイが開示されている。しかし、斜め蒸着によって生じる電極のエッジ（層間絶縁膜より離れている端）の合金組成がずれるため、微小ショートの原因となり問題となっていた。

#### 発明の開示

本発明は、このような従来技術がもつ欠点を克服し、高精細、均一発光であり、クロストークがなく、外部からの圧力に強く、さらに封止にも優れた有機エレクトロルミネッセンス素子の提供を目的とするものである。

本発明者らは、前記目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、垂直で切り立った層間絶縁膜を備え、さらにその上部に封止板を備えた素子が、パターン精度が良く、クロストークのない高精細ディスプレイであり、かつ安価で小型化、薄肉化が可能であることを見出した。本発明は、かかる知見に基づいて完成したものである。

すなわち、第 1 の発明は、基板 2 上の下部電極 3 と対向電極 4 との間に、発光層を含む有機層 5 を介在して設けてある有機エレクトロルミネッセンス素子 1 において、非発光素子部には吸水率が 0.1 % 以下の層間絶縁膜 6 が設けてあり、層間絶縁膜 6 の断差部分 9 が発光素子部分と非発光素子部分の境界を規定し、該断差部分 9 が下

部電極 3 の面に対しほぼ垂直に切り立っている箇所が存在しており、該層間絶縁膜 6 上に封止板又は封止蓋 7 が基板 2 に接着層 8 を介して貼り合わせてあることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子を提供するものである（図 1 参照）。

第 2 の発明は、基板 2 上に下部電極 3 を設けてあり、該下部電極 3 上にパターン加工された層間絶縁膜 6 が設けてある基板に、有機層 5 を設ける工程及び対向電極 4 を製膜する工程をそれぞれ少なくとも 1 回含む有機エレクトロルミネッセンス素子 1 の製造において、該層間絶縁膜 6 の断差部分 9 が発光素子部分と非発光素子部分との境界を規定し、該断差部分 9 がほぼ下部電極 3 の面に対しほぼ垂直に切り立っている箇所が存在しており、該箇所に対向電極 4 が断差部分 9 で断線しパターン加工されるとともに、該断差部分 9 の基板 2 側の端に対向電極 4 と層間絶縁膜 6 とが密着するように付着することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法を提供するものである。

第 3 の発明は、基板 2 上の下部電極 3 と対向電極 4 との間に、発光層を含む有機層 5 を介在して設けてある有機エレクトロルミネッセンス素子 1 において、非発光素子部には吸水率が 0.1 % 以下の層間絶縁膜 6 が設けてあり、層間絶縁膜 6 の断差部分 9 が下部電極 3 の面に対しほぼ垂直に切り立って逆テーパ型になっている箇所が存在しているとともに、対向電極 5 を複数に分離独立するようになり、該層間絶縁膜 6 上に封止板又は封止蓋 7 が基板 2 に接着層 8 を介して貼り合わせてあることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子を提供するものである。

第 4 の発明は、基板 2 上の下部電極 3 と対向電極 4 との間に、発光層を含む有機層 5 を介在して設けてある有機エレクトロルミネッ

センス素子 1 において、非発光素子部である下部電極 3 上に、断面が台形状の第 1 層間絶縁膜 1 5 が設けてあり、且つ、該台形状断面の上部（下部電極 3 の反対側）に第 2 層間絶縁膜 1 4 が設けてあり、該第 2 層間絶縁膜 1 4 の断差部分 9 が下部電極 3 の面に対しほぼ垂直に切り立っている箇所が存在しているとともに、対向電極 5 を複数に分離独立するようになっており、該層間絶縁膜 1 4 上に封止板又は封止蓋 7 が基板 2 に接着層 8 を介して貼り合わせてあることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子を提供するものである（図 2 参照）。

第 5 の発明は、基板 2 上に下部電極 3 を設けてあり、該下部電極 3 上にパターン加工された層間絶縁膜が設けてある基板に、有機層 5 を設ける工程及び対向電極 4 を製膜する工程をそれぞれ少なくとも 1 回含む有機エレクトロルミネッセンス素子 1 の製造において、第 1 層間絶縁膜 1 5 の断面は台形状であり且つ該台形状断面の上部（下部電極 3 の反対側）に第 2 層間絶縁膜 1 4 が設けてあり、該第 2 層間絶縁膜 1 4 の断差部分 9 が下部電極 3 の面に対しほぼ垂直に切り立っている箇所が存在しており、該箇所に対向電極 4 がパターン加工されるように対向電極 4 を製膜する工程を含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法を提供するものである。

#### 図面の簡単な説明

- 図 1 第 1 の発明の有機 E L 素子の断面図である。
- 図 2 第 4 の発明の有機 E L 素子の断面図である。
- 図 3 基板上の層間絶縁膜の断面図である。
- 図 4 対向電極の斜め蒸着時の断面図である。
- 図 5 本発明での対向電極蒸着後の断面図である。

- 図 6 第 3 の発明の層間絶縁膜等の断面図である。
- 図 7 層間絶縁膜の製膜時の断面図である。
- 図 8 フォトレジストのパターンニング後の断面図である。
- 図 9 パターンニング工程でのエッチング除去の際の断面図である。
- 図 10 層間絶縁膜の断面形状の図である。
- 図 11 層間絶縁膜を 2 層形成する際の立体図である。
- 図 12 X-Y 型マトリックスを上部より観察したときの図である。
- 図 13 X-Y 型マトリックスの断面図である。
- 図 14 アクティブマトリックス駆動の場合の回路図である。
- 図 15 アクティブマトリックス駆動の一例を示す平面図である。

上記図において各符合は次のとおりである。

1. 有機 EL 素子
2. 基板
3. 下部電極
4. 対向電極
5. 有機層
6. 層間絶縁膜
7. 封止板
8. 接着層
9. 断差部分
10. 対向電極エッジ
11. パターン加工されたフォトレジスト
12. エッチング部分
13. 開口部
14. 第 2 層間絶縁膜
15. 第 1 層間絶縁膜

- 20. SCAN電極線
- 21. DATA電極線
- 22. COMMON電極線
- 23. コンデンサ
- 24. 画素電極
- 25. 層間絶縁膜の開口部

### 発明を実施するための最良の形態

以下、本発明について詳細に説明する。

先ず、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子を構成する層間絶縁膜について説明する。

有機EL素子は、一对の下部電極と対向電極との間に、通電可能な有機層を介在させる構成が知られている。ここで、下部電極と対向電極との間に、絶縁膜を介在した箇所は、電流が流れないため発光することができない。この箇所は、非発光性素子部分となる。このような絶縁膜は層間絶縁膜と呼ばれ、層間絶縁膜をパターン加工することにより、発光素子のパターン加工を行う技術が知られている（特開平3-250583号公報）。

本発明では、層間絶縁膜を設けてある非発光素子部分と層間絶縁膜を設けていない非発光素子部分とを、分ける境界に位置する層間絶縁膜の断差部分がほぼ垂直に切り立っていることが必須である。ここで、層間絶縁膜の高さを $h$ ，層間絶縁膜の上部の幅を $W_1$ ，層間絶縁膜の下部の幅を $W_2$ とすると、図3において、層間絶縁膜の形状は、下記式



$$a \cong \frac{W_2 - W_1}{2}$$

で表されるが、本発明では、好ましくは  $a < (h / 7)$  であり、特に好ましくは  $a < (h / 10)$  である。逆テーパ状に加工されたときには、 $a < 0$  となる場合が、本発明の特に好ましい形態の 1 つである。尚、層間絶縁膜の高さ  $h$  の好ましい範囲は  $0.5 \mu m \sim 50 \mu m$  であり、この範囲であれば対向電極 4 が層間絶縁膜の断差部分 9 で断線し、対向電極 4 をパターン加工することができるようになる。

従来、このような切り立った断差ができないために、対向電極を斜め蒸着することによって、対向電極をパターン加工する技術（特開平 5 - 2 7 5 1 7 2 号公報）が知られていたが、この技術では、層間絶縁膜に対し、斜め方向より対向電極を蒸着し形成する。しかし、この技術では、図 4 に示すような対向電極 4 のエッジが生じ、このエッジ箇所 10 で短絡や発光の不均一性が生じやすく問題となっていた。また、斜め蒸着では、蒸着時の回り込みによって、エッジ部分のパターン精度が落ちるため、微細なパターンの加工性が低下して問題となっていた。

本発明では、層間絶縁膜の断差部分 9 がほぼ垂直に切り立っているため、斜め蒸着のような特殊な方法を用いることなく、自然に対向電極 4 が断差部分 9 で断線し、対向電極 4 のパターン加工ができる。第 1 及び第 2 の発明では、パターン加工された箇所において、隣接する層間絶縁膜 6 の断面に、発光素子部分の対向電極 4 は接している。断面より離れた対向電極 4 が存在しないことが第 1 及び第 2 の発明の特徴であり、本発明の利点を引き出す（図 5）。これによる効果は下記のようなものである。

(a) 層間絶縁膜 6 のパターンがそのまま対向電極 4 パターンを定めるため、パターン精度が極めて優れている。従って、数  $\mu\text{m}$  の精度も可能となる。

(b) 対向電極 4 のエッジにおいて、対向電極 4 の組成ムラや製造ムラが生じないため、発光の不均一が生じない。また、このようなムラが電界の不均一性を生じ、短絡を防ぎ、クロストークを防ぐことができた。さらに、対向電極 4 の発光素子部分のエッジは、層間絶縁膜 6 に接するため酸化しにくい利点もある。

(c) 層間絶縁膜 6 のパターンニング自身は、フォトリソグラフ法を用いることにより、 $1\mu\text{m}$  の精度も可能であるため、対向電極 4 のパターンニング精度も高い他、対向電極 4 の高精細パターンニングも可能となる。数  $\mu\text{m}$  ピッチまでが可能となるため、高精細なディスプレイ、プリンターヘッドなどの高精細パターンニングを要求される用途にも十分に使用可能である。

第 3 の発明においては、同様に対向電極 4 が断差部分 9 で断線し、対向電極のパターン加工ができる。逆テーパ型の場合には、蒸着の曲がり込みがあった場合にも断差部分 9 に蒸着物が付着することが防がれ、より確実に断線することができる。第 3 の発明における利点は、前記 (a) 及び (b) と同様であり、高精細、高密度の陰極パターンニングが可能となる。但し、図 6 で示されるように、第 3 の発明では、対向電極 4 は有機層 5 を覆い尽くしてはならず、下部電極 3 に短絡してはならない。

第 4 及び第 5 の発明においては、図 2 のように第 1 層間絶縁膜 15 を設けて発光パターンを確定するとともに、ほぼ垂直に切り立った第 2 層間絶縁膜 14 により、対向電極 4 をパターン加工する。ここで、第 1 層間絶縁膜 15 を用いる理由は、第 2 層間絶縁膜 14

と対向電極エッジの密着が悪い場合にも、確実にエッジで生じる短絡等の不具合箇所を発光素子部分より除外して、通電しないようにするためである。

上記のような構成により、前記 (a), (b), (c) の効果を得ることができる。また、第2層間絶縁膜14は逆テーパ型であっても良いし、前記したような、 $a < (h/10)$  を満たすものであっても良い。

本発明で用いられる層間絶縁膜の材質は、高精細パターンニングが可能な材質である必要がある。具体的には、例えば種々の絶縁性ポリマー、絶縁性酸化物、絶縁性窒化物、絶縁性硫化物等が好ましく用いられる。特に好ましいポリマーとしては、フッ素化ポリイミド、ポリオレフィン、フッ素系ポリマー、ポリキノリン等であり、特に好ましい酸化物は  $\text{SiO}_x$  ( $1 < x < 2$ ),  $\text{SiO}_2$ , フッ素系添加  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , 等であり、好ましい窒化物は  $\text{SiN}$ , ( $1 < y < 4/3$ ),  $\text{SiON}$ ,  $\text{AlSiON}$  等であり、好ましい硫化物  $\text{ZnS}$  等である。

さらに、層間絶縁膜は絶縁性の他、低吸湿性のものがより好ましく用いられる。特に好ましい層間絶縁膜6は、吸湿性(吸水率)が0.1%以下のものである。吸湿性が高いものは、素子を保存した際、素子作製中に混入した水分がしみ出すことにより、素子の電極を酸化させることになり、素子の劣化が生じる。また、発光欠陥(ダークスポット)の原因となる。低吸湿性のポリマーを用いることは、特に加工面で優れているので好ましい。特に好ましいものは、フッ素系又はポリオレフィン系の層間絶縁膜である。吸湿性は、例えばASTM規格D570に準拠し、吸水率として評価できる。

層間絶縁膜は、感光性の機能を特に必要としないが、この機能を

保有していると、フォトレジストを用いることなく、フォトリソグラフィが可能となり便利な場合がある。感光性を付与したものは、ポリマー、無機酸化物を問わずに市販されている。

次に、層間絶縁膜の製膜及びパターンニング工程について説明する。

本発明中の層間絶縁膜は、種々の製膜方法及びパターンニング工程が用いられるが、フォトリソグラフィを用いた代表的な例を以下に示す。

#### (i) 層間絶縁膜の製膜

絶縁性ポリマーの場合には、ポリマー溶液又はポリマー前駆体溶液を塗布、スピコート、ディッピングなどにより製膜する(図7)。絶縁は酸化物の場合には、蒸着、CVD、プラズマCVD、ECR-CVD、スパッタリング、ECR-スパッタリングなどの各種の製膜方法にて行うことができる。

#### (ii) フォトレジストの感光及び現像

各種のフォトレジストを用いることにより、これを感光し、さらに現像することにより、フォトレジストのパターンニングを行う(図8)。要求されるパターンの精細度及び精度により、フォトレジスト及び露光法の選定を行う。露光法には、各種の方法が知られているが、例えばコンタクト露光法、縮小露光法などがある。

#### (iii) パターンニング工程

各種エッチング方法により、フォトレジストが残存していない部分をエッチング除去する(図9)。エッチング方法としては、溶媒により層間絶縁膜を溶解し除去するウェットエッチング法、プラズマ等により層間絶縁膜を分解除去するドライエッチング法があるが、ほぼ垂直に層間絶縁膜を下部電極3の面に対し切り立てるには、ド

ライエッチング法が好ましい。

ウェットエッチング法を用いる場合には、基板に対し垂直方向の層間絶縁膜のエッチングの速度が大きい溶媒を用いることが必要である。各種層間絶縁膜に応じて、この溶媒が存在する場合は、ウェットエッチング法を用いることが生産コスト、生産性を向上させる点で好ましい。

ドライエッチング法を用いる場合には、エッチングガスの選定が重要である。フッ素化ポリイミド、ポリオレフィン、ポリキノリンなどのポリマーに対しては、酸素プラズマを用いてエッチングすることが好ましい。一方、フッ素系ポリマー、フッ素添加  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  などは、フッ化炭化ガスをプラズマによりラジカル化したものがエッチングガスとして用いることが好ましい。フッ化炭化ガスとしては、 $\text{CHF}_3$ ,  $\text{CF}_4$  などが特に好ましい。また、ハロゲン化ホウ素ガスを用いること、酸素、アルゴンなどをフッ化炭化ガスに混合し用いることも好適である。

以上のようにして層間絶縁膜の作製工程を終えることができるが、別の方法も存在する。酸化物を混合したペーストをスクリーン印刷等により、製膜パターン化した後、数百度で焼成して、パターン加工された層間絶縁膜を作製することができる。

次に、対向電極及びその作製工程、並びに封止板について説明する。

対向電極 4 を陰極とするときは、アルカリ金属含有合金、アルカリ土類金属含有合金が好ましい。特に好ましい合金としては、 $\text{Mg} : \text{Ag}$ ,  $\text{Al} : \text{Li}$ ,  $\text{Pb} : \text{Li}$ ,  $\text{Zn} : \text{Li}$ ,  $\text{Bi} : \text{Li}$ ,  $\text{In} : \text{Li}$ ,  $\text{Al} : \text{Ca}$  などである。これらは比較的耐食性があり、低仕事関数であることが知られている。

これらを製膜するときは、蒸着法、スパッタリング法が好ましく用いられ、特に好ましい方法は蒸着法である。本発明では、斜め方向より蒸着する必要は全くない。むしろ本発明の素子を得るためには、基板面に対して直下より蒸着すべきである。

対向電極 4 を陽極とするときは、透明性酸化物を用いることが好ましい。特に好ましいものとしては、ITO, ZnO:Al, SnO<sub>2</sub>:Sb, InZnO (インジウム亜鉛酸化物) が挙げられる。

本発明の素子においては、層間絶縁膜 6 又は第 2 層間絶縁膜 14 上に封止板 7 を位置させる。封止板又は封止蓋 7 の好ましい材質は、ガラス又は酸化物、窒素化物セラミックス薄板である。封止板又は封止蓋 7 の好ましい膜厚は、5  $\mu$ m ~ 2 mm である。特に薄型の素子を得るには、500  $\mu$ m 以下の膜厚の封止板が好ましい。

従来は、薄い封止板を用いたときには、封止板が外圧や衝撃によって素子の本体部分と接触し、素子が破損することが問題となっていた。ところが、本発明においては、層間絶縁膜 6 又は第 2 層間絶縁膜 14 が柱となり封止板 7 と素子本体との接触を防止している。

従って、有機 EL 素子 1 全体の薄型化が封止板 7 を薄くすることにより可能となり、封止板 7 を 50  $\mu$ m 程度以下としても何ら問題がない。

以下に、本発明のより好ましい態様について説明する。

先ず、封止板についてのより好ましい態様としては、以下のものがある。

(a) 封止板 7 と基板 2 とで挟まれている (囲まれている) 空間内に、封止液としてフッ化炭化水素を満たし、熱放熱性を高め、封止特性を高める。

(b) 封止板 7 と基板 2 とで挟まれている空間内に、吸湿剤を混入する。吸湿剤としては、ゼオライト、シリカ、焼石膏、炭酸カルシウムなどが好適である。

(c) 封止板 7 の内側（外側は素子の外と接する側）に、吸湿層を設ける。吸湿層としては、吸湿ポリマー、吸湿ポリマーと吸湿剤との混合した層の他、紫外線又は熱による硬化を行った樹脂で封止板の内側に吸湿剤を固定化した層がある。ここで、吸湿性ポリマーとしては、ポリアミド、ポリビニルアルコール、ポリビニルブチラール等がある。

(d) 封止板 7 と基板 2 とで挟まれている空間内には、封止ガスとして脱水された窒素、二酸化炭素、ヘリウムなどを好適に用いることができる。

(e) また、対向電極より光を取り出す場合、封止板上にカラーフィルターを入れることで、発光の色純度を上げること、あるいはコントラストを上げることができる。

(f) 同様に、対向電極より光を取り出す場合、封止板内であって対向電極より上部にカラーフィルターを入れることによっても、発光の色純度を上げること、あるいはコントラストを上げることができる。(g) さらに、封止板上又は対向電極より上部で封止板内部に、色変換膜を入れることによっても、発光色を変換することができる。変換できる色は、青色から赤色又は橙色、緑色から赤色又は橙色、青色から緑色又は白色などである。この色変換膜はパターン化されており、緑色に変換する膜及び赤色に変換する膜が分離並置されているものも可能である。

次に、本発明では、層間絶縁膜 6 及び第 2 層間絶縁膜 14 の断面形状には、ほぼ基板面に対し図 10 に示した 3 態様 (a), (b),

(c)等が存在する。ここで、本発明においては、 $|a| < (h/7)$ の範囲が好ましい。(b)あるいは(c)の態様は $a < 0$ の場合であり、逆テーパ型に加工されていることが特徴であり、本発明の好ましい形態の1つである。これは、確実に断差部分で対向電極が断線するからである。

また、本発明では、層間絶縁膜の断差が存在するが、対向電極4が断線しない箇所を作ることにも可能である。例えば、断差部分9に、 $a > (h/5)$ のテーパ加工を行うならば、対向電極4を断線させることは必要ない。

従って、層間絶縁膜を2層形成することとし、1層目の膜の断差部分では垂直に切り立てて、2層目の膜の断差では、テーパ加工すれば発光素子部分を形成する層間絶縁膜の開口部では、図11のように切り立った断面とテーパ断面に囲まれた箇所ができる。この切り立った箇所では、対向電極は断線するが、テーパ断面では断線しない。

そして、第4及び第5の発明では、これらのことを利用している。即ち、第1層間絶縁膜15では、対向電極を断線しないように断面が台形状になっており、発光画素面を確定するために用いている。第2層間絶縁膜14はその断差が切り立っており、対向電極を断線させ、これを利用してパターンニングできる。

さらに、本発明では、層間絶縁膜上の対向電極4を形成しないように、蒸着マスクをかけることもできる(特開平3-250583号公報)。従って、層間絶縁膜上に、対向電極4が存在しない部分を作ることにも可能である。

上記のような本発明は、例えば以下のような態様にしても好適に用いることができる。



(i) 本発明では、下部電極 3 を平行なストライプ型電極として多数形成し、さらに本発明の層間絶縁膜を該ストライプと垂直なストライプとして多数形成することが可能である。この際、本発明を用いれば、X-Y型のマトリックスを形成することができる。

図 1 2 は、このような X-Y型マトリックスを上部より観察したときの図であり、また、図 1 3 は、この X-Y型マトリックスの断面図である。

(ii) T F T 駆動やアクティブマトリックス駆動では、上記 (i) 記載の X-Y型マトリックスを形成する必要がないが、このような場合でも、本発明の素子の構成を用いることができる。

例えば、トランジスターを用いるアクティブマトリックス駆動では、画素ごとに図 1 4 の回路が組み込まれている。この際、図 1 5 の回路配置の構成において、端部 2 5 と画素電極に対応する部分のみに本発明の層間絶縁膜の開口部を設けるならば、対向電極  $T r_1$ ,  $T r_2$ ,  $S C A N(20)$ ,  $D A T A(21)$ ,  $C O M M O N(22)$  上の対向電極と画素電極上の対向電極は、層間絶縁膜の断差により絶縁されることになる。

従って、画素電極上の対向電極 4 のみに通電することにより、 $T r_1$ ,  $T r_2$ ,  $S C A N$ ,  $D A T A$ ,  $C O M M O N$  は、画素電極上の対向電極 4 と導通することが回避できる。従来は、層間絶縁膜の欠陥などにより対向電極と、 $T r_1$ ,  $T r_2$ ,  $S C A N$ ,  $D A T A$ ,  $C O M M O N$  との導通が生じ、画素欠陥が生じることが多かったが、これらのことが回避できる。

尚、 $S C A N$ ,  $D A T A$ ,  $C O M M O N$  と対向電極 4 が交差する部分、また、 $C O M M O N$  と  $S C A N$ ,  $S C A N$  と  $D A T A$  が交差する部分には、お互いが絶縁するために、予め別の層間絶縁膜が設

けてあり、これらは層間絶縁膜上部の電極線が断線しないように、本発明の層間絶縁膜と異なり垂直な断差は保有していない。従って、本発明では断差が垂直でない層間絶縁膜を部分的に用いてもよい。

次に、本発明を実施例によりさらに詳しく説明するが、本発明は、これらの例によってなんら限定されるものではない。

#### 実施例 1〔層間絶縁膜の作製〕

300  $\mu\text{m}$ ピッチでストライプ加工されたITOを保有（ITOは下部電極）するガラス基板2（0.5 mm厚）上に日本ゼオン社製ZCOAT-1410をスピコートにて製膜した。この時の回転数は1500 rpmであり35秒間回転させた。膜厚は5.3  $\mu\text{m}$ で製膜できていた。尚、ZCOAT-1410は、感光性ポリオレフィン系のネガタイプレジストである。

次にホットオープンにて70℃、30分の条件でベークした。次にフォトリソを用い露光した。この時の条件は、436 nmの紫外線露光で120 mJ/cm<sup>2</sup>の照射量であった。露光パターンは幅20  $\mu\text{m}$ の層間絶縁膜であるZCOAT1410が100  $\mu\text{m}$ おきに上記ITOパターンに垂直に、線状ラインとして残るようにした。

さらに現像後、250℃2時間の条件でクリーンオープン中でキュアを行い、層間絶縁膜を作製した。

#### 実施例 2〔層間絶縁膜の垂直性評価、吸湿性の評価〕

上記の実施例1で作製した試料を任意の地点で破断し、2 mm×2 mmの10個のサンプルを作製し、断面を走査型電子顕微鏡で観察した。{(下部幅) - (上部幅)} / (高さ)を20カ所で測定し、そのすべてにおいてこの値は1/10以下であった。また同時に、実施例1で作製した試料の吸水率（吸湿性）を測定したところ0.07%（ASTM規格D570に準拠）と良好な値を示した。

## 実施例 3〔有機 EL 素子作製及び精細度の評価〕

実施例 1 で作製した試料をイソプロピルアルコールにて 3 分間、超音波にて洗浄してさらに UV とオゾンの併用の洗浄装置にて 30 分間、洗浄を行った。次に市販（日本真空技術社製）の真空蒸留装置に試料を入れて、基板ホルダーに固定した。モリブテン製の抵抗加熱ポートに N, N'-ジフェニル-N, N'-ビス-(3-メチルフェニル)-[1, 1'-ビフェニル]-4, 4'-ジアミン（以下 TPD と略記）を 200 mg 入れ、また違うモリブテン製の抵抗加熱ポートにトリス（8-ヒドロキシキノリノール）アルミニウム（Alq と略記する）を 200 mg 入れて真空槽を  $1 \times 10^{-4}$  Pa まで排気した。その後 TPD 入りのポートを加熱し、膜厚 80 nm の正孔輸送層を成膜した。これを真空槽から取り出すことなく、正孔輸送層の上に Alq からなる膜厚 75 nm の発光層を成膜した。次に真空槽を開けることなく、あらかじめ真空槽内に設けてある抵抗加熱ポートに Mg とタングステンバスケットに銀が入ったものを加熱し、Mg と Ag の蒸着レートをそれぞれ  $1.4 \text{ nm/s}$ ,  $0.1 \text{ nm/s}$  として膜厚 200 nm の Mg, Ag 対向電極を製膜した。これにより封止前の有機 EL 素子ができた。

次に、有機 EL 素子上に不活性気体中（N<sub>2</sub> 中）にて封止板を接着した。封止板として厚さ  $100 \mu\text{m}$  のガラス板を用い、これに脱水処理を行った。シリカゲルを可溶性ナイロン溶液に分散したものを塗布し脱水剤とした。この脱水剤がついた面を素子側として、封上板の周囲を紫外線硬化性接着剤を塗布し、封止板と有機 EL 素子を貼り合わせ紫外線照射を行い封着した。これにより本発明の封上した有機 EL 素子が完成した。この素子の厚さは  $0.6 \text{ mm}$  であり極めて薄く説明の有効性を示した。

次にストリップラインのうち、ITOの1本とMg:Agの1本を選び、ITOを+極、Mg:Agを-極として電圧7Vを印加し、パターンの精度を光学顕微鏡下で調べたところ、パターン精度が±1μmと極めて良好であり、ITOとMg:Agのストライプの交差部分だけ発光した。

また、全てのMg:Agストリップラインの電圧印加を順次行い調べた結果、互いに短絡しつながつた箇所はないことが判明し、本発明の素子の対向電極のパターンニングは良好であることが判明した。本発明の素子を空气中(20℃, 60%RH)で5000時間保存しても、大きさ50μmφ以上の発光欠陥がなく、封上性能も良好であることが確認された。

また、同時にストリップラインのエッジの無発光化状態を調べたところ、無発光幅は3μm以下であり、エッジも良好に規定されていることが判明した。

さらに封止板を指で押さえ、素子の短絡の有無を見たが、層間絶縁膜が柱となっているため、一切短絡しなかった。

#### 比較例 1

実施例1で使用したのと同じストライプのITO下部電極を保有するガラス上に、感光性ポリイミドコーティング剤(トーレ社 UR3140)をスピコートにて回転数4000rpmで30秒間かけて塗布した。次いで、80℃, 60分間の乾燥を行い、発光パターンのフォトリソを通して露光を行った。露光量は80mJであった。

次に現像を行い、ポリアミク酸のポリマーのパターンが得られた。これをN<sub>2</sub>ガス下のオープン中で、180℃, 30分、さらに300℃にて30分キュアしてポリイミドである層間絶縁膜付の

I T O / ガラス基板が作製できた。ここで実施例 2 と同様な試験を行ったところ { (下部の幅) - (上部の幅) } / (高さ) は 1 程度であった。実施例 3 と同様に素子を作製しストリップラインのうち I T O の 1 本と M g : A g の 1 本を選んで電圧を印加したが、選んだ両方のストライプが交差した部分以外に発光する部分が存在し、M g : A g 対向電極のストライプ状のパターン加工ができていないことが判明した。また、封止後のサンプルを 20 °C, 60 % R H の大気中に放置したところ、発光面は著しく減少していた。このことは層間絶縁膜であるポリイミドの吸湿性が大きいため (通常 1 ~ 2 %)、層間絶縁膜が吸湿しており封止した後にポリイミドに吸湿した水分が放出され、M g : A g 対向電極を酸化したためである。

実施例 4 [層間絶縁膜がフッ素系ポリマーである場合]

吸水率 0.01 % 以下 (A S T M 規格 D 5 7 0 に準拠) のフッ素樹脂製層間絶縁膜を形成できるフッ素系樹脂溶液 (旭ガラス社製: サイトップ C T X - 8 0 9) を 600 回転で 30 秒間スピンコートして膜厚 4.8  $\mu$ m のサイトップ膜を形成した。

尚、基板 2 は実施例 1 で用いたものと同じである。

さらに、ホットプレート上で 50 °C で 1 分, 80 °C で 1 分, 120 °C で 1 分間乾燥し、最終キュアーとして 250 °C で 1 時間オープン中で乾燥した。

次に、東京応化製ポジ型フォトレジスト T O P R - 1 0 0 0 をスピンコート塗布した。条件は 3000 回転で 20 秒間であった。次に、ホットプレート上で 110 °C, 90 秒間乾燥した。次に、g 線にて露光した。条件は 500 mW / c m<sup>2</sup> で 1 秒間の照射であった。その後、現像した。

次に、ドライエッチング装置であるプラズマエッチャーによりエ

エッチングを行った。エッチングに用いたガスは、 $\text{CF}_4$ 、 $\text{CHF}_3$ 、 $\text{Ar}$ の混合ガスであり、流量は24, 24, 98 S C C mであった。真空度は0.5 T o r rでありプラズマ出力は300 Wであった。エッチングは50分間行った。

次に、実施例2と同様に断面を観察したところ{(下部幅) - (上部の幅)} / (高さ) は、1 / 10であった。

#### 実施例5 [逆テーパ型 of 層間絶縁膜の作製]

300  $\mu\text{m}$ ピッチでストライプ加工されたITOを保有(I TOは下部電極)するガラス基板2(0.5 mm厚)上に、日本ゼオン社製ZCOAT-1410をスピコートにて製膜した。この時の回転数は1000 r p mであり40秒間回転させた。膜厚は8.8  $\mu\text{m}$ で製膜できていた。

次にホットオープンにて80℃, 15分の条件でベークした。次にフォトリソを用い露光した。この時の条件は、365 nmの紫外線露光で450 m J /  $\text{cm}^2$ の照射量であった。露光パターンは幅50  $\mu\text{m}$ の層間絶縁膜が350  $\mu\text{m}$ ピッチで、上記ITOパターンに垂直に、線状ラインとして残るようにした。

さらに現像後、200℃1時間の条件でクリーンオープン中でキュアを行い、層間絶縁膜を作製した。

次いで、実施例2と同様にして断面を走査型電子顕微鏡で観察した。その結果観察した断面の全てにおいて、{(下部幅) - (上部の幅)} / (高さ) の値は負であり、図10の(b)又は(c)の形状であり、逆テーパ型であった。

#### 実施例6 [有機EL素子作製及び精細度の評価]

実施例5で作製した試料を用いて、実施例3と同様にして有機EL素子を作製した。また、実施例3と同様にしてパターン精度を評

価した。

その結果、Mg : Ag のストリップラインで互いに短絡して繋がったところはなく、パターンニングの方法が良好であったことが確認された。パターン精度は $\pm 4 \mu\text{m}$ であった。

#### 実施例 7〔有機 EL 素子作製及び精細度の評価〕

300  $\mu\text{m}$ ピッチでストライプ加工されたITOを保有（ITOは下部電極）するガラス基板2（0.5 mm厚）上に、1  $\mu\text{m}$ の膜厚で $\text{SiO}_2$ をプラズマエンハンスドCVDで製膜した。製膜条件は、プラズマガス種を $\text{N}_2\text{O}$ と $\text{SiH}_4$ の1 : 1の混合ガスとし、基板温度250℃、真空度0.7 Torr、プラズマ出力200 Wとした。

次に、実施例4と同様にして東京応化工業(株)製のポジ型フォトリソ resist TOPR-1000を製膜し、露光、現像後、前記ストライプ加工されたITOに垂直に開口ラインが施されたパターンが残るようにした。開口ラインの幅は280  $\mu\text{m}$ 、ピッチ300  $\mu\text{m}$ であった。

続いて、プラズマエッチングを行い、フォトリソ resistの開口部の $\text{SiO}_2$ を完全に除去し、ITO面が露出するようにした。 $\text{SiO}_2$ のエッチング条件は、ガス種として $\text{CF}_4$ 、 $\text{CHF}_3$ 、Arの1 : 1 : 3.5（体積比）の混合ガスを用い、真空度0.5 Torr、プラズマ出力300 Wとした。

ここで用いた $\text{SiO}_2$ は層間絶縁膜としては、極めて吸水率が小さく0.01%以下のものであった。

次に、実施例3と同様にして有機EL素子を作製し、評価を行った。パターン精度は1  $\mu\text{m}$ 以下と良好であった。また対向電極のパターンニングは良好であった。

#### 実施例 8〔有機 EL 素子作製及び精細度の評価〕

300  $\mu\text{m}$ ピッチでストライプ加工されたITOを保有（ITOは下部電極）するガラス基板2（0.5 mm厚）上に、スパッタリング法で $\text{SiO}_x$ （ $x=1.8$ ）を300 nm製膜した。

次に、実施例4と同様にして東京応化工業(株)製のポジ型フォトリソ resist TOPR-1000を製膜し、露光、現像後、前記ストライプ加工されたITOに垂直に開口ラインが施されたパターンが残るようにした。開口ラインの幅は280  $\mu\text{m}$ 、ピッチ350  $\mu\text{m}$ であった。

次に、フォトリソ resistを基板ごとに150  $^{\circ}\text{C}$ に加熱し、フォトリソ resistの断面がかまぼこ状になるようにした。

続いて、プラズマエッチャーによりエッチングを行った。エッチング条件は、ガス種として $\text{CF}_4$ 、 $\text{CHF}_3$ 、Arの1:1:8（体積比）の混合ガスを用い、真空度0.2 Torr、プラズマ出力200 Wとした。

次いで、フォトリソ resistを剝離し、第一の層間絶縁膜を作製した。なお、前記かまぼこ状の断面のフォトリソ resistは、第一の層間絶縁膜の断面が台形となるようにするためである。

さらに、プラズマエッチングによって、 $\text{SiO}_x$ を台形状に加工した。

その後、前記第一の層間絶縁膜上に、実施例5と同様にして、ZCOAT-1410を製膜し、第二の層間絶縁膜を作製した。

ここで用いた第一の層間絶縁膜及び第二の層間絶縁膜の吸水率は0.01%以下と極めて小さかった。

次に、実施例3と同様にして有機EL素子を作製し、評価を行った。パターン精度は1  $\mu\text{m}$ 以下と良好であった。また対向電極のパターニングは良好であった。



産業上の利用可能性

本発明の有機EL素子は、高精細、均一発光であり、クロストークがなく、外部からの圧力に強く、さらに封止にも優れた有機エレクトロルミネッセンス素子である。

このような本発明の有機EL素子は、例えばOA機器用、時計用等の高精細、均一発光のディスプレイなどに好適に用いられる。

## 請求の範囲

1. 基板 2 上の下部電極 3 と対向電極 4 との間に、発光層を含む有機層 5 を介在して設けてある有機エレクトロルミネッセンス素子 1 において、非発光素子部には吸水率が 0.1 % 以下の層間絶縁膜 6 が設けてあり、層間絶縁膜 6 の断差部分 9 が発光素子部分と非発光素子部分の境界を規定し、該断差部分 9 が下部電極 3 の面に対しほぼ垂直に切り立っている箇所が存在しており、該層間絶縁膜 6 上に封止板又は封止蓋 7 が基板 2 に接着層 8 を介して貼り合わせてあることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

2. 基板 2 上に下部電極 3 を設けてあり、該下部電極 3 上にパターン加工された層間絶縁膜 6 が設けてある基板に、有機層 5 を設ける工程及び対向電極 4 を製膜する工程をそれぞれ少なくとも 1 回含む有機エレクトロルミネッセンス素子 1 の製造において、該層間絶縁膜 6 の断差部分 9 が発光素子部分と非発光素子部分との境界を規定し、該断差部分 9 がほぼ下部電極 3 の面に対しほぼ垂直に切り立っている箇所が存在しており、該箇所に対向電極 4 が断差部分 9 で断線しパターン加工されるとともに、該断差部分 9 の基板 2 側の端に対向電極 4 と層間絶縁膜 6 とが密着するように付着することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

3. 基板 2 上の下部電極 3 と対向電極 4 との間に、発光層を含む有機層 5 を介在して設けてある有機エレクトロルミネッセンス素子 1 において、非発光素子部には吸水率が 0.1 % 以下の層間絶縁膜 6 が設けてあり、層間絶縁膜 6 の断差部分 9 が下部電極 3 の面に対しほぼ垂直に切り立って逆テーパ型になっている箇所が存在してい

るとともに、対向電極 5 を複数に分離独立するようになっており、該層間絶縁膜 6 上に封止板又は封止蓋 7 が基板 2 に接着層 8 を介して貼り合わせてあることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

4. 基板 2 上の下部電極 3 と対向電極 4 との間に、発光層を含む有機層 5 を介在して設けてある有機エレクトロルミネッセンス素子 1 において、非発光素子部である下部電極 3 上に、断面が台形状の第 1 層間絶縁膜 1 5 が設けてあり、且つ、該台形状断面の上部に第 2 層間絶縁膜 1 4 が設けてあり、該第 2 層間絶縁膜 1 4 の断差部分 9 が下部電極 3 の面に対しほぼ垂直に切り立っている箇所が存在しているとともに、対向電極 5 を複数に分離独立するようになっており、該層間絶縁膜 1 4 上に封止板又は封止蓋 7 が基板 2 に接着層 8 を介して貼り合わせてあることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

5. 基板 2 上に下部電極 3 を設けてあり、該下部電極 3 上にパターン加工された層間絶縁膜が設けてある基板に、有機層 5 を設ける工程及び対向電極 4 を製膜する工程をそれぞれ少なくとも 1 回含む有機エレクトロルミネッセンス素子 1 の製造において、第 1 層間絶縁膜 1 5 の断面は台形状であり且つ該台形状断面の上部に第 2 層間絶縁膜 1 4 が設けてあり、該第 2 層間絶縁膜 1 4 の断差部分 9 が下部電極 3 の面に対しほぼ垂直に切り立っている箇所が存在しており、該箇所で対向電極 4 がパターン加工されるように対向電極 4 を製膜する工程を含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

図 1

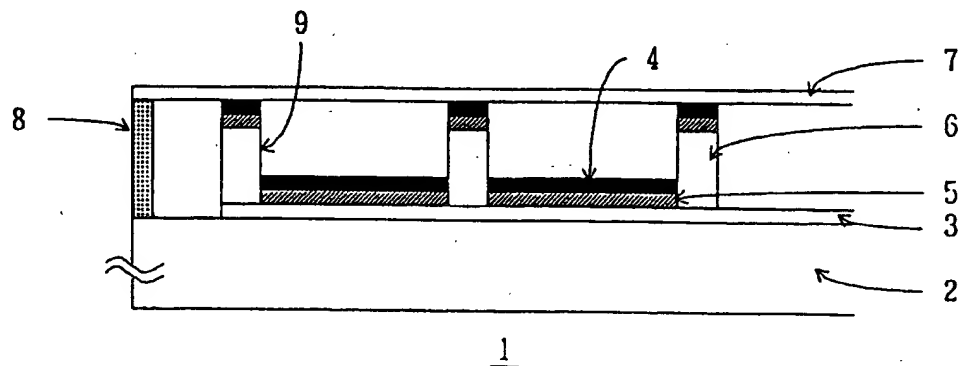


図 2

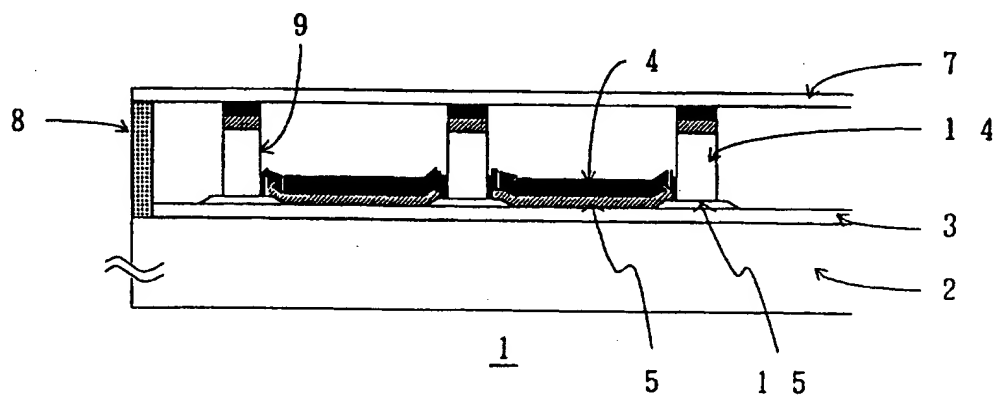


図 3

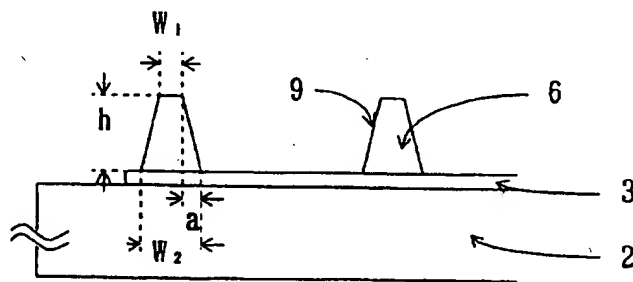


図 4

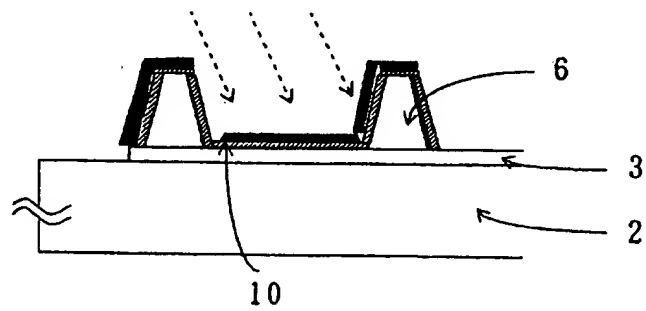


図 5

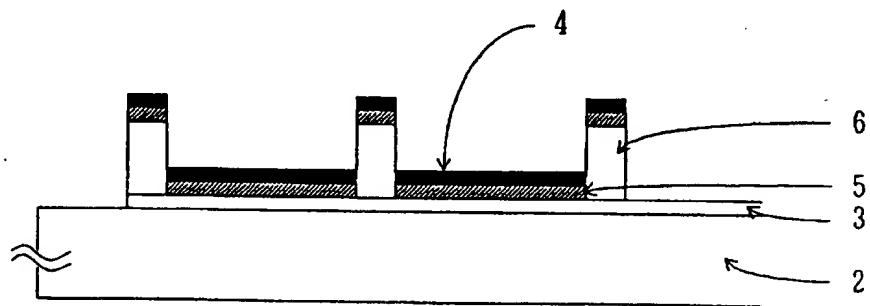


図 6

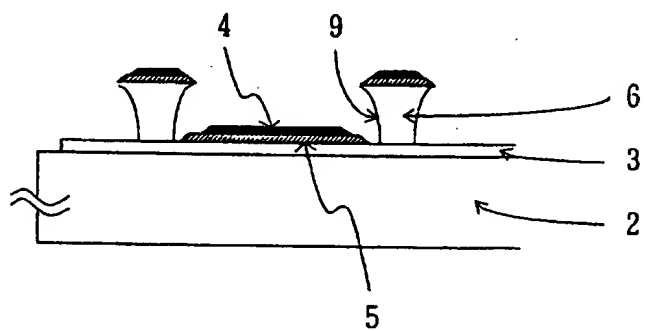


図 7

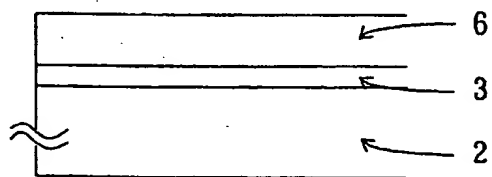


図 8

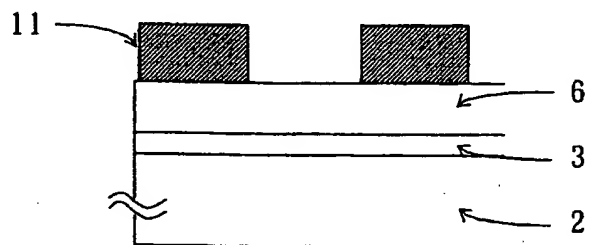


図 9

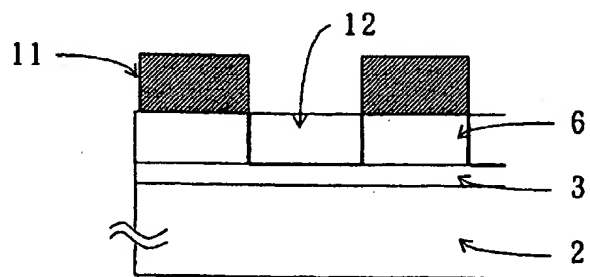


図 1 0

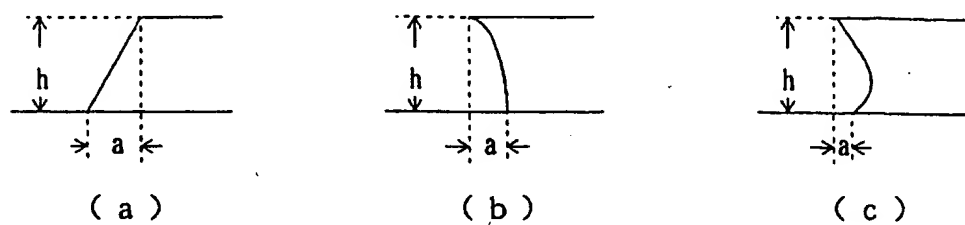


図 1 1

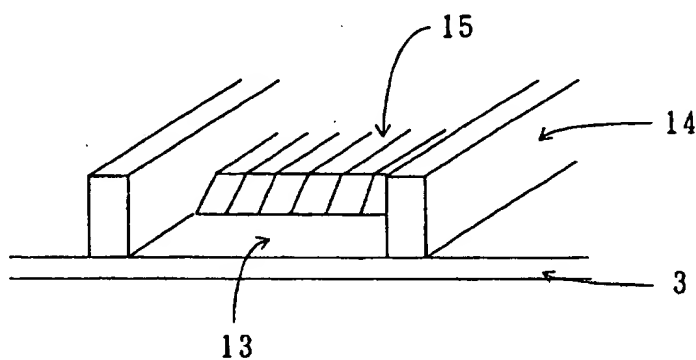


図 1 2

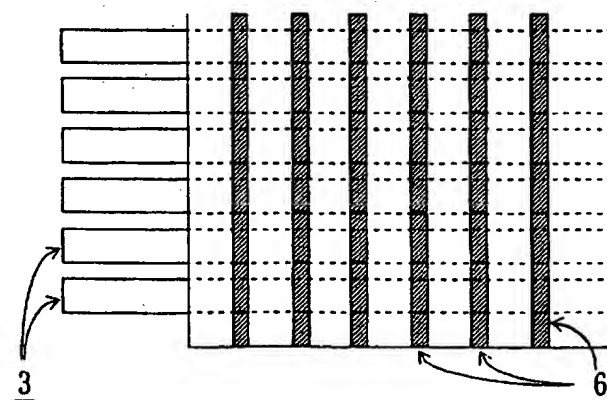


図 1 3

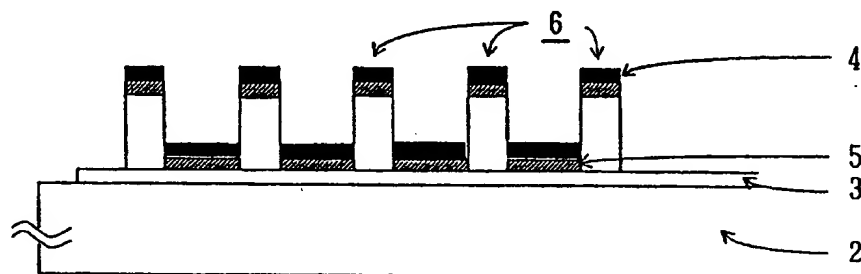


図 1 4

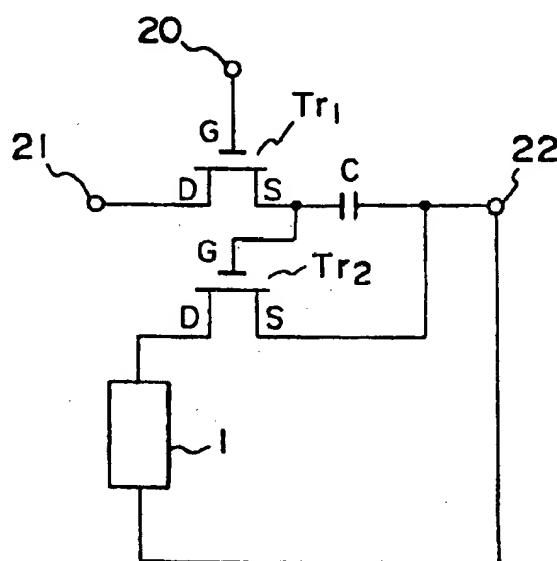




FIG 15

